

## Mo-Re合金とW-Re合金の中性子照射による微細組織 発達に関する研究

著者	根本 義之
号	2440
発行年	1999
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/7713">http://hdl.handle.net/10097/7713</a>

氏名	ねもと よしゆき 根本 義之
授与学位	博士（工学）
学位授与年月日	平成 12 年 3 月 23 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科（博士課程）量子エネルギー工学専攻
学位論文題目	Mo-Re 合金と W-Re 合金の中性子照射による微細組織発達に関する研究
指導教官	東北大学教授 阿部 勝憲
論文審査委員	主査 東北大学教授 阿部 勝憲      東北大学教授 松井 秀樹 東北大学教授 内田 俊介      東北大学助教授 長谷川 晃

## 論文内容要旨

### 第 1 章 序論

タンゲステン(W)およびモリブデン(Mo)は高融点、高熱伝導率、また耐スパッタリング特性が良いことなどから核融合炉用高熱流束機器の候補材料として検討されている。その際、延性の改善および再結晶脆化抑制のため、レニウム(Re)を添加した W-Re 合金および Mo-Re 合金の使用が考えられている。また核融合炉環境においては 14MeV 中性子照射による W から Re、さらにオスミウム(Os)への核変換が顕著におこることが予測されている。したがって W-Re 合金および Mo-Re 合金の照射特性を明らかにすることが重要である。しかしながらこれまでに行われている研究の多くは低照射損傷量におけるものであり、中性子重照射による微細組織発達挙動や機械的性質変化における Re の役割などについては未だ系統的には明らかにされていない。

そのため本研究においては、W-Re 合金および Mo-Re 合金の中性子重照射による照射誘起析出などの微細組織発達挙動および照射硬化挙動について Re 濃度依存性や照射条件依存性を明らかにし、それをもとにこれら合金における最適な Re 添加量を検討することを目的として研究を行った。

### 第 2 章 実験方法

本研究で使用した試料は、焼結法で作製された W-26wt.%Re 合金と、純 Mo および Mo-Re 合金（Re 濃度：2, 4, 5, 10, 13, 41wt.%）である。これらの試料を熱間および冷間で圧延し、W-26Re 合金は 0.15mm 厚、Mo-Re 合金は 0.25mm 厚とした。その後これらの試料を直径 3mm の円盤状および 2mmx12mm の短冊状に切り出し、応力除去熱処理(SR 材)および再結晶熱処理(R 材)を行った。

これらの試料のうち W-26Re 合金と Mo-41Re 合金は Re 濃度が固溶限界に近いこと、照射中の高温における長時間保持が析出挙動に及ぼす影響を調べるために、非照射材の熱時効実験を行った。熱時効条件は中性子照射材との比較のために、照射温度とほぼ同じ温度の 673K、873K、1073K における約 1ヶ月間の保持とした。

次に中性子照射条件について述べる。W-26Re 合金は高速中性子束試験施設 (FFTF/MOTA-2A)、サイクル 11 において 646K ~ 1073K の照射温度で約 2 ~ 11dpa までの中性子照射された。Mo-Re 合金は増殖実験炉 (EBR-II/COBRA-1A1) において 661K ~ 889K の照射温度で約 6dpa まで中性子照射され、また FFTF/MOTA-2B, サイクル 12 において 681K ~ 1072K の照射温度で約 20dpa まで中性子照射された。照射後、透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察、EDS 分析、および X 線回折実験を行い、照射誘起析出などの微細組織発達の評価を行った。またビッカース硬さ試験を行い、微細組織発達による照射硬化挙動について調べた。

### 第 3 章 結果

熱時効実験の結果、1073K で熱時効した W-26Re 合金においてのみ塊状の  $\sigma$  相析出物の生成が確認された。一方、673K、873K で熱時効した W-26Re 合金および、673K、873K、1073K で熱時効した Mo-41Re 合金においては析出物の生成は確認されなかった。

中性子重照射した W-26Re 合金の TEM 観察の結果、全ての照射試料において塊状の  $\sigma$  相析出物および長い板状の  $\chi$  相の析出物が観察された。 $\chi$  相析出物の寸法は照射温度の上昇に伴って増加したが、照射前熱処理

条件依存性および照射損傷量依存性は認められなかった。 $\chi$ 相析出物は母相の(011)面上に薄い板状に発達しており、その長手方向は母相の(0 $\bar{1}1$ )方向に平行であった。電子線回折結果から $\sigma$ 相および $\chi$ 相析出物ともに、母相と(001)面が互いに平行であることが見出された。熱時効実験結果との比較から、これらの析出物は照射により誘起されたと結論された。また、ボイドおよび転位ループは観察されなかった。

中性子重照射したMo-Re合金のTEM観察結果の典型例を図1に示す。全てのMo-Re合金の照射試料において、W-26Re合金の照射材の場合と同様に塊状の $\sigma$ 相析出物および長い板状の $\chi$ 相析出物が観察された。これらの析出物はRe濃度の上昇に伴い寸法が増加し、10wt.%以上のRe濃度では数密度が減少した。また照射温度の上昇に伴い寸法が増加し数密度が減少した。また照射損傷量が約6dpa～20dpaの範囲では、照射誘起析出物の寸法および数密度に照射損傷量依存性は認められなかった。 $\sigma$ 相析出物の生成には顕著な照射前熱処理条件依存性がみられ、SR材においてR材よりも $\sigma$ 相析出物の寸法が小さく、数密度が大きいという結果が得られた。一方、 $\chi$ 相析出物の生成には照射前熱処理条件依存性はみられなかった。

EDS分析の結果を表1に示す。Reの核変換によって生成したと考えられるOsが母相中および析出物中で検出された。Re量に対するOs量の比は母相中および析出物中において、いずれも20%以上で同じ程度であった。この結果はこれまで報告されている核変換量の予測計算値の約10%に比較して大きく、重要な結果である。

また、純MoおよびMo-Re合金の全ての照射試料でボイドが観察された。これは、照射温度を試料の融点で規格化した $T_{irr}/T_m$ の値が同じ程度の、W-26Re合金の照射材でボイドが生成していなかったのとは異なる結果である。Re濃度の上昇に伴い、また照射温度の上昇に伴い、ボイドの寸法が増加し数密度は減少した。ボイドの生成挙動に明らかな照射前熱処理条件依存性は認められなかった。またMo-5Re合金においては照射損傷量の増加に伴いボイドの寸法が増加し、数密度が減少した。

EBR-IIにおいて661Kで約6dpa照射したMo-5Re合金、およびFFTF/MOTA-2Bで約20dpa照射した純Mo、Mo-4Re、Mo-10Re合金の681K照射材および純Moの874K照射材において転位ループが観察された。転位ループの寸法はRe濃度によって著しく変化することはなく、数密度は純MoよりもMo-Re合金において比較的多くなった。また照射温度の上昇に伴い寸法は増加し数密度は減少した。約6dpa～20dpaの範囲では照射損傷量が上昇しても、転位ループの寸法および数密度はほとんど変化しなかった。

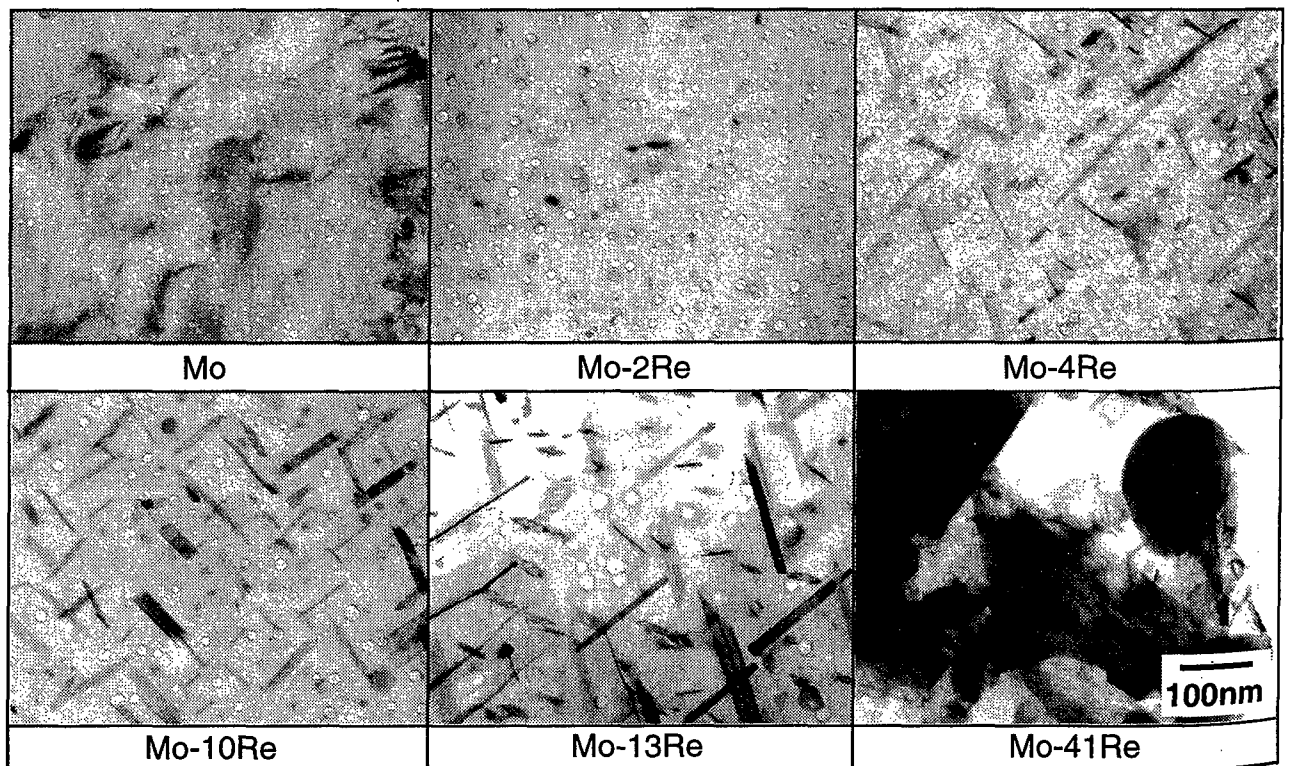


図1 Mo-Re合金の中性子重照射材におけるTEM観察結果[R材、1072K/18dpa照射材]

次に純MoおよびMo-Re合金のビッカース硬さ試験結果について述べる。いずれの中性子照射試料においても明瞭な照射硬化が観察された。図2にMo-Re合金/R材の照射硬化量のRe濃度依存性を示す。874K以下の照射温度においては照射硬化量はRe濃度の上昇に伴って上昇し、その照射硬化量は3つの照射温度ともほぼ同じであった。これに対して1072K照射材の照射硬化量は比較的小さく、かつRe濃度にあまり依存しないという特徴が見出された。照射前熱処理条件依存性としては、特に高Re濃度の合金において、R材よりもSR材における照射硬化量が小さくなった。また照射損傷量の上昇に伴って照射硬化量は上昇したが、その傾向はRe濃度の高い合金においてより顕著であった。

#### 第4章 考察

以上の結果をもとに照射誘起析出挙動について考察を行った。照射誘起析出挙動の照射前熱処理条件依存性から、 $\sigma$ 相析出物の核生成の優先的サ

イトは照射前から存在した亜粒界や微細粒の粒界などであり、 $\chi$ 相析出物の核生成の優先的サイトは照射によって生成した転位ループなどの照射欠陥であったと考えられる。また、母相と析出物の格子のミスフィットによって析出物の表面がシンクとなりReを含む欠陥を吸収し析出物が成長したものと考えられる。本研究の結果、および著者の研究室において行われたMo-41Re合金の水素イオン照射実験の結果から、Mo-Re合金における照射誘起析出は、照射のごく初期においてはほぼ飽和に達したものと推定された。FFTF/MOTA-2B照射材において観察された $\sigma$ 相析出物について検討し、この照射条件では析出がほぼ飽和に達していると考察した。またそのことからEDS分析によって検出されたOsのかなりの部分は、照射誘起析出物の生成が飽和に達した後に照射により核変換したと推定した。

次に、ボイドの生成挙動と析出物生成の実験的相関についての考察を行った。析出物の表面が格子間原子のシンクと考えられることから、母相中の残留空格子点濃度は析出物の全表面積に依存し、そのため母相中のボイドの成長は析出物の存在量に依存すると考えられる。FFTF/MOTA-2B照射材におけるボイドの体積と析出物の表面積の関係をそれぞれの照射温度において評価し、ボイドの体積は析出物の表面積の和に比例していることを示した。

次にFFTF/MOTA-2B照射材における微細組織発達による硬化量をオロワン応力により評価し、ビッカース硬さ試験によって求めた照射硬化量との比較を行った。その結果、照射硬化挙動のRe濃度依存性は析出物生成のRe濃度依存性を反映したものであり、また照射温度依存性はボイドと転位ループ生成の照射温度依存性を反映したものであることが明らかになった。図2におけるMo-41Re合金の照射温度874K以下の試料で測定された硬さは $\sigma$ 相析出物の硬さにほぼ相当し、1072K照射材の硬さは $\chi$ 相析出物の硬さにほぼ相当することを明らかにした。

以上に述べた微細組織発達と照射硬化に関する実験結果と他の特性に関する報告結果とを比較して、Mo-Re合金におけるRe添加の効果について検討し、中性子重照射条件では約2wt.%程度が最適なRe添加量であることを示した。またこれまでに報告されているW-Re合金の研究結果および本研究の結果から中性子重照射条件ではW-Re合金のRe添加量の最適値は約10wt.%以下の範囲であることを示した。

#### 第5章 結論

以上の結果および考察を総括して結論とし、今後の核融合炉用高熱流束機器材料としてのMo-Re合金およびW-Re合金開発の指針を提言した。

表1 EDS分析結果(Mo-10Re/R材[FFTF/MOTA-2B, 874K/21dpa照射材])、単位；wt.%

	Mo	Re	Os	Os/Re
母相	89	9	2	22%
$\sigma$ 相析出物	26	59	15	25%

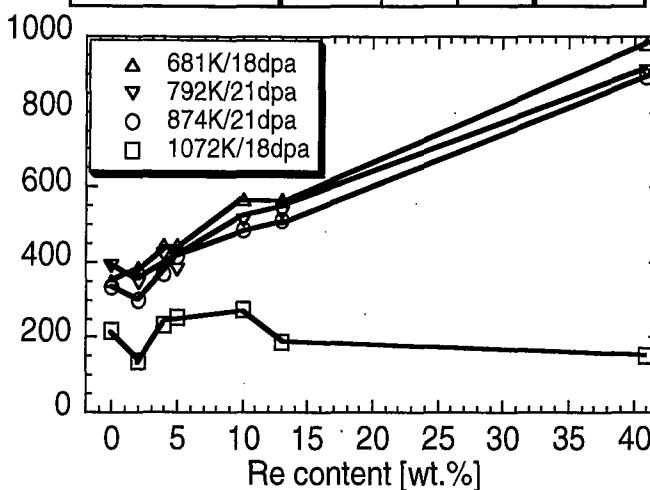


図2 Mo-Re合金(R材)の照射硬化量のRe濃度依存性

## 審査結果の要旨

タングステン(W)およびモリブデン(Mo)は核融合炉用高熱流束機器の候補材料として検討されている。その際、延性改善のためレニウム(Re)を添加したW-Re合金およびMo-Re合金の使用が考えられ、また核変換によりWからReおよびオスミウム(Os)が生成する可能性がある。著者はW-Re合金およびMo-Re合金の中性子重照射に及ぼすReの影響を系統的に明らかにするために、照射誘起析出などの微細組織発達挙動およびそれによる照射硬化挙動について、そのRe濃度依存性、熱処理条件依存性、照射条件依存性を実験的に明らかにし、またその結果からMo-Re合金におけるRe添加効果を検討し、中性子重照射条件では約2wt.%程度のRe添加量が最適であることを明らかにした。本論文はこの研究成果についてまとめたもので、全5章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景および目的を述べている。

第2章では本研究で用いたW-Re合金およびMo-Re合金の作成方法、熱処理条件、熱時効実験条件、中性子照射条件、照射後試験の実験方法について記述している。

第3章では、熱時効実験結果、中性子照射試料の微細組織観察結果、照射誘起析出物の同定結果、EDS分析結果について記述し、照射誘起析出物を始めとする微細組織発達のRe濃度依存性、熱処理条件依存性、照射条件依存性について明らかにしている。それにより $\sigma$ 相析出物の生成は熱処理条件の調整によって抑制できる可能性があることを示している。約6dpa～20dpaの範囲では照射誘起析出物の生成は照射損傷量によってほとんど変化しないことを明らかにした。また照射により核変換生成したOsは母相と析出物中にほぼ同じ割合で存在することを明らかにしている。次にビッカース硬さ試験結果について述べ、照射硬化量のRe濃度依存性、照射前熱処理条件依存性、照射条件依存性について明らかにしている。それにより本照射条件におけるMo-Re合金の照射硬化量は2wt.%のRe添加量で最小となること、またRe添加量の高いMo-Re合金ほど照射硬化量が照射損傷量の上昇に伴って大きくなることを明らかにしている。

第4章では照射誘起析出挙動について検討し、照射誘起析出物の生成が照射の初期の段階においてほぼ飽和に達することを推察している。またボイドの生成挙動と析出物生成の相関について検討し、ボイドの成長は照射誘起析出物の全表面積に依存することを示している。次に微細組織発達と照射硬化挙動の相関について検討している。以上に述べた微細組織発達と照射硬化に関する知見から、Mo-Re合金における中性子重照射条件でのRe添加効果について検討し、約2wt.%程度が最適なRe添加量であることを示し、さらにW-Re合金のRe添加量の最適値についても重要な示唆を行っている。

第5章は結論である。

以上要するに本論文は、W-Re合金およびMo-Re合金の高照射損傷量領域における照射誘起析出挙動および照射硬化挙動について明らかにし、中性子重照射条件におけるMo-Re合金のRe添加量の最適値を提言するなど、今後の核融合炉用W-Re合金およびMo-Re合金の開発において重要な知見を得ており、量子エネルギー工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。